# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number:

04 - 290526

(43)Date of publication of application: 15.10.1992

(51)Int.Cl.

B01D 53/34 CO1B 31/20

C258 3/04

(21)Application number: 03-056363

(71)Applicant: HITACHI LTD

(22)Date of filing:

20.03.1991

(72)Inventor: OGAWA TOSHIO

**DOI RYOTA** 

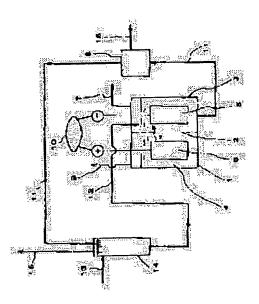
HIDA HIROSHI KURODA OSAMU MORI TOSHIKATSU

## (54) METHOD FOR SEPARATING AND REUTILIZING CARBON DIOXIDE

## (57) Abstract:

PURPOSE: To realize a simple system for separating and reutilizing carbon dioxide by simultaneously regenerating an absorbent and reducing carbon dioxide in the method in which carbon dioxide is separated with the alkaline absorbent.

CONSTITUTION: An aq. alkaline soln. is used as the liq. absorbent 11, the absorbent is brought into contact with a waste combustion gas contg. carbon dioxide to absorb and fix the carbon dioxide in the stage 14, and the absorbent having absorbed carbon dioxide is electrochemically reduced. In this case, the absorbent having absorbed carbon dioxide is supplied to an electrolytic reducing stage 1, the carbon dioxide is converted to the reduction product, the reduced absorbent 11 is recycled to the stage 14, and the carbon dioxide is separated and reutilized.



#### LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision

of rejection]
[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]
[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

国際調査報告

(19)日本国特許庁 (JP)

## (12) 公開特許公報(A)

特開平4-290526

(43)公開日 平成4年(1992)10月15日

(51) Int.Cl. <sup>6</sup>	識別記号	庁内整理番号	FI	技術表示箇所
B 0 1 D 53/34	135 Z	7158 – 4D		
C 0 1 B 31/20	В	7003 – 4 G		
C 2 5 B 3/04		8414 – 4K		

審査請求 未請求 請求項の数 5(全 4 頁)

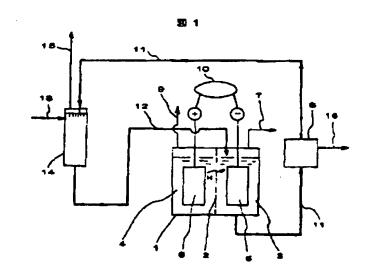
-		
(21)出願番号	特願平3-56363	(71)出願人 000005108
		株式会社日立製作所
(22)出願日	平成3年(1991)3月20日	東京都千代田区神田駿河台四丁目6番地
		(72)発明者 小川 敏雄
		茨城県日立市久慈町4026番地 株式会社日
		立製作所日立研究所内
		(72)発明者 土井 良太
		茨城県日立市久慈町4026番地 株式会社日
		立製作所日立研究所内
		(72)発明者 飛田 紘
		茨城県日立市久慈町4026番地 株式会社日
		立製作所日立研究所内
		(74)代理人 弁理士 高田 幸彦
		. 最終頁に続く

### (54) 【発明の名称】 炭酸ガス分離再資源化方法

#### (57)【要約】

【構成】アルカリ性水溶液を吸収液11とし、これと炭 酸ガス含有燃焼排ガスを接触させて炭酸ガスを吸収固定 する工程14と、炭酸ガス吸収液を電気化学的に還元す る工程をもち、炭酸ガス吸収液を電解還元1工程へ供給 して炭酸ガスを選元物へ変換すると同時に還元処理後の 吸収液11は炭酸ガス吸収工程14へリサイクルする炭 酸ガス分離再資源化方法。

【効果】炭酸ガスの分離再資源化で、アルカリ性吸収剤 を利用した炭酸ガス分離工程を含む方法において、吸収 剤の再生と炭酸ガスの還元を同時に行わせる簡易なシス テムが実現する。



# であり、電気化学的手法に好都台である。そこで炭酸ガスの電気化学的還元手法の開発が活発に進められている。しかし、この分野の検討の多くは特開平2-207844 号公報に示してあるような炭酸ガス電解還元反応に関するもので工業プロセスとしての検討にまだ至っていない

#### 【特許請求の範囲】

【請求項1】アルカリ性水溶液を吸収液とし、前記吸収液と燃焼排ガス等の炭酸ガス含有ガスを接触せしめ炭酸ガスを前記吸収液中に固定する炭酸ガス吸収工程と、前記吸収液中の炭酸ガスを電気化学的に還元する電解還元工程をもち、吸収工程で炭酸ガスを吸収して得た前記吸収液を電解還元工程へ供給し、その炭酸ガスを電気化学的に還元物へ変換すると同時に、還元処理後の前記吸収液は炭酸ガス吸収工程へリサイクルすることを特徴とする炭酸ガスの分離再資源化方法。

【請求項2】請求項1において、電解液と炭酸ガス含有 ガスを接触させ、炭酸ガスの吸収と電解還元による再資 顔化を同一容器内で行なう方法。

【請求項3】アルカリ性吸収液として、アルカリ金属の 炭酸塩および/もしくは水酸化物、特にK<sub>2</sub>CO<sub>3</sub>、KO H、NaOHの少なくとも一種を含む水溶液を用いる炭 酸ガス分離再資源化方法。

【請求項4】請求項1または2において、前記電解還元 工程で得られた前記吸収液を液中還元生成物分離工程を 経た後、吸収工程へリサイクルする炭酸ガス分離資源化 20 方法。

【請求項 5】請求項 4 において、液中還元生成物分離工程に蒸留法、膜分離法を適用する炭酸ガス分離資源化方法。

#### 【発明の詳細な説明】

[0001]

【産業上の利用分野】本発明は燃焼排ガスなどに含まれる炭酸ガスを分離、再資源化することにより、炭酸ガスの大気への放出量を削減する方法に関する。

[0002]

【従来の技術】最近、炭酸ガスによる地球の温暖化は世界的な問題となっており、各国が協力して解決策を見出そうとしている。それらの解決策を大別すると、(1)省エネルギ化の推進、(2)新エネルギの開発と導入、

(3) 炭酸ガスの分離再資源化があげられる。分離再資 原化に当たっては化石燃料排ガス等として排出された炭 酸ガスを分離濃縮ししかる後にメタン等の有価物に還元 して再資源化する方法が考えられる。

【0003】炭酸ガスの分離濃縮に有効な方法として、炭酸カリウムなどのアルカリ性溶液で炭酸ガスを吸収し、その後、溶液を加熱して高濃度の炭酸ガスを回収すると同時に回収液を再生する、例えば、熱炭酸カリ法(文献添付)がある。この方法では、再生に熱エネルギを必要とし、その低減が重要な技術課題となっている。一方、炭酸ガスの再資源化にあたっては、炭酸ガスー水系から有機化合物を合成する方法が有望視される。この方法に含まれる化学反応は自由エネルギの増加する反応

[0004]

のが実情である。

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、燃焼 排ガス等からの炭酸ガス分離、濃縮から還元物質への転 10 換による再資源化に至る工業プロセスとして有効な一貫 システムを提供することにある。

[0005]

【課題を解決するための手段】本発明の目的は、以下の方法により達成できる。すなわち、燃焼排ガス等から炭酸ガスを吸収除去する炭酸ガス吸収工程と、吸収液中の炭酸ガスを電気化学的に還元する電解還元工程をもち、吸収工程で炭酸ガスを吸収して得た吸収液を電解還元工程へ供給し、ここで炭酸ガスを電気化学的に還元してメタン等へ変換し、還元後の吸収液は炭酸ガス吸収工程へリサイクルして再び吸収液として利用する方法。

【0006】本発明の方法は、また、以下の方法により 達成できる。

【0007】電解還元工程において、電解液に炭酸ガス含有ガスを接触させ、炭酸ガスの吸収と電解による炭酸ガス再資源化と吸収液の再生を同一容器内で行わせる方法。本発明における吸収液は、アルカリ性水溶液、特にアルカリ金属の炭酸塩および/もしくは水酸化物、特に好ましくはK<sub>2</sub> CO<sub>3</sub>、KOH、NaOHの少なくとも一種を含む水溶液が効果的に適用できる。

【0008】また、本発明の方法では、電解還元工程において、電解生成物としてメタン、CO等の気体のみならずC.H。OH等の常温において液体の物質を得る場合がある。この様な場合には、電解還元工程で得られた吸収液を液中還元生成物分離工程を経た後吸収工程へリサイクルすることにより本発明の目的は達せられる。液中還元生成物分離工程には蒸留法、膜分離法等の分離操作が適用できる。

[0009]

【作用】本発明の作用を吸収液として $K_2$ CO、水溶液を用いた場合を例にとって説明する。 $K_2$ CO、水溶液と炭酸ガス含有ガスを接触させると、炭酸ガスは次式により $K_2$ CO、水溶液に吸収される。

【0010】K.CO1+H.O+炭酸ガス⇒2KHCO1 得られたKHCO1は、電解還元工程で陰極還元反応に 供すると次式等により炭酸ガスの還元生成物を生成する とともに吸収液は再生される。

[0011]

 $2 \text{ KHCO}_3 + 8 \text{ H} + 8 \text{ e} \rightarrow \text{CH}_1 + 3 \text{ H}_2 \text{ O} + \text{K}_2 \text{ CO}_1$  $4 \text{ KHCO}_3 + 1 2 \text{ H} + 1 2 \text{ e} \rightarrow \text{C}_2 \text{ H}_1 + 6 \text{ H}_2 \text{ O} + 2 \text{ K}_2 \text{ CO}_3$  BEST AVAILABLE G

-164-

3

#### $2 \text{ KHCO}_1 + 2 \text{ H} + 2 \text{ e} \rightarrow \text{CO} + 2 \text{ H} \cdot \text{O} + \text{K} \cdot \text{CO}_3$

再生されたK: CO: 水溶液は、再び、吸収工程で炭酸ガスの吸収に供することができる。

【0012】また、電解還元工程で吸収液を炭酸ガス含 有ガスと接触させることにより、吸収反応と還元反応を 同一容器内で行わせることができる。

#### [0013]

【実施例】以下、本発明の一実施例を図1により説明す 10 る。図1は電解還元槽1と吸収塔14およびこれらを接 続する吸収液流路11及 び再生液液流路12等からな る。電解還元槽はガラスあるいは高分子材料、例えば、 塩ビ、ポリエチレン、テフロン等の材質、または、これ らの材料を金属材料に内張りして構成される。槽は隔 膜、例えば、陽イオン交換膜2で二室に仕切って、陰極 室3と陽極室4を構成してある。陰電極室にはCu電極 板 5、陽電極室にはP1電極板6が陽イオン交換膜2を 中間に両電極板を平行位置するように相対して設けてあ り、両極板からはリード線が電解用電源(太陽光発電装 20 置)10に接続してある。陰電極室には電極板が充分に 浸漬する量のK: CO: 水溶液に炭酸ガスを吸収させて得 たKHCO」を主成分とする水溶液を満たし、陽極室に は、通電が可能な様に電解質水溶液を満たす、電源10 から両電極板間へ直流電流を流すと、陰極室では、還元 反応により上部から再資源の燃料となるH<sub>2</sub>、CH<sub>1</sub>、C ¿Hi, CO等のガス生成物7が、電解液中にはCHiO H、C2H3OH などの液生成物16が生成すると同時 にKHCO<sub>1</sub>の少なくとも一部は炭酸ガス吸収能を持つ K.CO』に再生される。再生された吸収液は液中還元 30 生成物分離器8でCH;OHやC:H;OH の液中生成物 を分離した後、流路11を経て吸収塔14へ送られる。

【0014】吸収塔で、再生吸収液は流路13より導入される炭酸ガス含有ガスと接触し、再び、KHCO。を

主成分とする吸収液となる。この吸収液は流路12を経 て電解還元槽へ送る。

【0015】本発明の他の実施例を図2に示す。図2の方法は図1の方法の変形例であり、炭酸ガス含有ガスが流路13を通じて電解槽1の陰極室3に、直接、導びかれる点が図1の方法との最大の相違点である。図2において、炭酸ガス含有ガスは電解槽の陰極室において吸収液に吸収され、吸収された炭酸ガスは、直ちに、メタン等に還元されると同時に吸収液は再生され、再び、炭酸ガスの吸収能を持つようになる。電解還元生成物として液中生成物が存在する場合、吸収液は流路11を経て液中還元生成物分離器8に導かれ、ここで液中生成物を除去した後、陰極室にもどされる。

#### [0016]

【発明の効果】本発明によれば、炭酸ガスの分離再資源 化、特に、アルカリ性吸収剤を利用した炭酸ガス分離工 程を含む方法において、吸収剤の再生と炭酸ガスの還元 を同時に行わせる簡易なシステムが実現する。

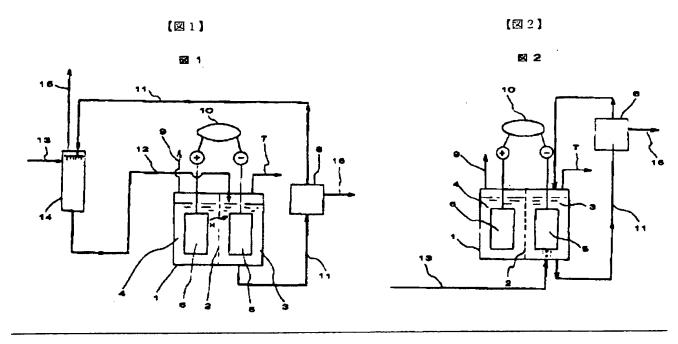
#### 【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の一実施例の炭酸ガス吸収工程と電解還 元工程を含む炭酸ガス分離再資化方法の系統図。

【図2】図1の方法の変形例を示す炭酸ガス分離再資源 化方法の系統図。

#### 【符号の説明】

1…電解還元権、2…隔膜(陽イオン交換膜)、3…陰極室、4…陽極室、5…Cu電極、6…Pt電極、7…ガス生成物、8…液中還元生成物分離器、9…分解ガス、10…電解用電源、11…吸収液流路、12…再生吸収液流路、13…炭酸ガス含有ガス流路、14…吸収塔、15…精製ガス、16…液中還元生成物。



フロントページの続き

(72)発明者 黒田 修 茨城県日立市久慈町4026番地 株式会社日 立製作所日立研究所内 (72) 発明者 森 利克 茨城県日立市久慈町4026番地 株式会社日 立製作所日立研究所内